

Ultrakorte optische pulsen

Koos Duppen, Douwe A. Wiersma en Erik T.J. Nibbering
Fysisch Chemisch Laboratorium, Materials Science Center
Rijksuniversiteit Groningen

Botsbrief NNV, december 1990

Tijd en frequentie

Het concept tijd heeft een belangrijke rol gespeeld in de ontwikkeling van de wetenschap vanaf de dagen van de klassieke oudheid tot vandaag de dag toe. De aartsvader van de Griekse filosofen/wetenschappers, Thales van Milete, ontleende een groot deel van zijn roem aan het korrekt voorspellen van de zonsverduistering van 28 mei 585 v. Chr. met een nauwkeurigheid van ca. 10^4 sekonde. Sindsdien is de mogelijkheid om voorspellingen experimenteel te verifiëren over een enorm gebied van tijdschalen uitgebreid. Om twee voorbeelden uit de deeltjesfysika te noemen: op grond van experimentele gegevens meent men te kunnen conkluderen dat de levensduur van het proton meer dan 10^{38} sec. bedraagt [1], terwijl de levensduur van het rho-meson ongeveer 10^{-23} sec. is [2]. Dit is een verschil van 61 ordes van grootte!

Deze twee voorbeelden illustreren meteen twee experimentele benaderingswijzen: bij het langzame proces (proton verval) worden individuele of collectieve gebeurtenissen direkt "getimed", terwijl het bij snellere processen handiger is om naar de frequentierespons van een systeem te kijken. Resultaten in tijd- en frequentiedomein zijn, uiteraard, aan elkaar gerelateerd via een onzekerheidsrelatie in de vorm:

$$\Delta\omega \Delta t \gtrsim 0,5 \quad (1)$$

Het is gebruikelijk om voor Δ de volledige breedte op halve hoogte te nemen (FWHM) i.p.v. de standaard deviatie (RMS), zodat de faktor 0,5 in formule (1) vervangen moet worden door een konstante, die van de vorm van de signalen afhangt.

Wanneer deeltjesbotsingen bij hoge energie een rho-meson resonantie veroorzaken met een breedte van 154 MeV, dan is een interpretatie in termen van een levensduur waarschijnlijk gerechtvaardigd (T_1 -processen). I.h.a. is het echter mogelijk dat ook andere dynamische processen een rol spelen, zoals bijv. botsingen tussen de deeltjes onderling of interacties met de omgeving waarin de geëxciteerde toestand is ingebed. Voor de totale (homogene) lijnbreedte zijn nu dus meerdere oorzaken aan te wijzen, die samen kunnen worden gevat onder de naam defaserende processen (T_2 -processen). Als (een deel van) de fluktuaties traag zijn t.o.v. de T_1 -processen, dan is de tijdschaal van deze processen niet meer van belang, maar wel de amplitude. In zo'n geval wordt gesproken van een inhomogene bijdrage aan de lijnvorm.

Om de verschillende dynamische processen te kunnen scheiden, is het waardevol om ook op korte tijdschaal tijdsafhankelijke experimenten te doen. Met name de niet-lineaire respons van systemen maakt het mogelijk om de verschillende dynamische bijdragen te scheiden. Een combinatie met

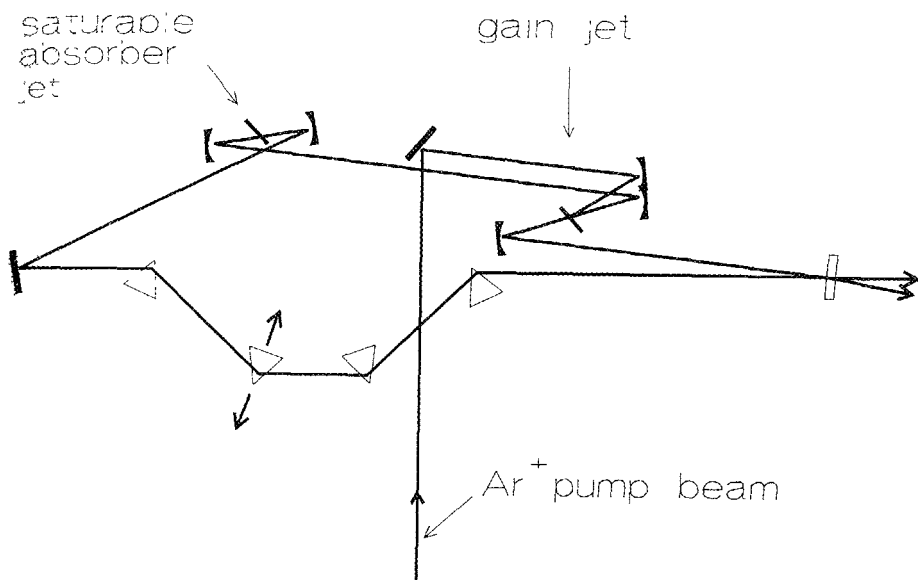
(niet-lineaire) frequentiedomein technieken kan dan een goede test zijn voor de consistentie van de ontwikkelde modellen. In dit verhaal komen tijd domein optische technieken aan de orde met een resolutie van ca. 10^{-14} seconde. Voor ons is deze resolutie nodig o.a. om fluktuaties te bestuderen die plaatsvinden in elektronische toestanden van molekulen in de vloeistof-fase.

Pulskompressie

De meest voor de hand liggende manier om een hoge tijdsresolutie te bereiken in optische experimenten is om zeer korte lichtpulsen te maken [3]. Hiervoor is het nodig, volgens formule (1), dat de lichtbron een grote bandbreedte heeft en dat er goed gedefinieerde faserelaties bestaan tussen de verschillende frequentie componenten. De kortst mogelijke puls ontstaat

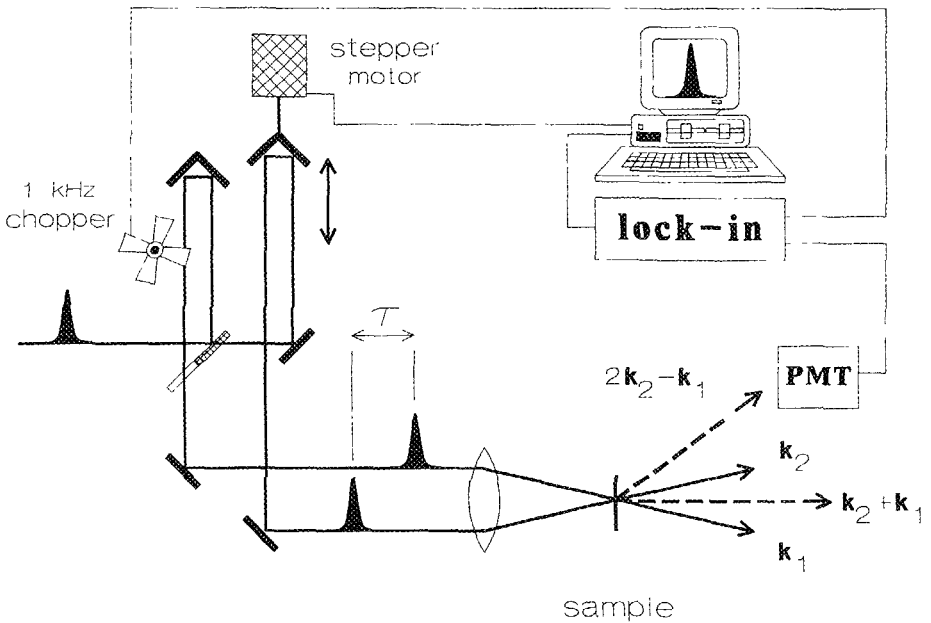
vermoedelijk in die situatie, waarin alle frequentiecomponenten in fase zijn op dezelfde tijd op één of ander punt in de ruimte.

In een laser is het vrij eenvoudig de fases van de verschillende longitudinale modes te koppelen. Dit is op drie manieren mogelijk: 1) door periodiek de versterking of de verliezen te moduleren (aktieve modelocking), 2) door de verliezen intensiteitsafhankelijk te maken (passieve modelocking), 3) door interferentie met een externe resonator (additieve modelocking). In figuur (1) staat de Colliding Pulse Modelocked (CPM-)laser afgebeeld zoals die in ons laboratorium in gebruik is. In deze laser spelen verschillende lineaire en niet-lineaire optische interacties een rol [4], maar het basisprincipe is dat van passieve modelocking. De pulsduur bedraagt in ons geval ongeveer 40 fsec., zoals afgeleid kan



Figuur 1.

Schematisch overzicht van een Colliding-Pulse-Modelocked-(CPM-)laser. De vier prisma's zorgen voor goed gebalanceerde dispersie compensatie in de laser trilholte



Figuur 2

Geometrie van twee experimenten. Pulsduren worden gemeten in een autocorrelatie experiment. Hierin wordt m.b.v. een niet-lineair optisch kristal de tweede harmonische opgewekt van de laserfrequentie ($k_{\text{signaal}} = k_2 + k_1$). Vloeistof dynamika wordt bestudeerd m.b.v. oplossingen van kleurstof molekulen. In dat geval is de frequentie van het signaal (bijna) gelijk aan de laserfrequentie zelf ($k_{\text{signaal}} = 2k_2 - k_1$).

worden uit een autocorrelatiebreedte van 60 fsec. In een autocorrelatie experiment wordt de convolutie van een puls met zichzelf gemeten d.m.v. 2^{de} harmonische generatie, zoals in figuur 2 staat afgebeeld.

Om deze pulsen nog korter te krijgen, wat voor onze experimenten nodig bleek te zijn, moet gebruik worden gemaakt van niet-lineair optische effecten (zie onder). Hiertoe worden de relatief zwakke CPM-laser pulsen versterkt m.b.v. een koperdamp laser. Vanwege de beperkte bandbreedte van de versterkingskleurstof zijn de pulsen nu iets langer geworden (figuur 3) met een energie van ca. 2 μ Joule. Dit lijkt misschien niet veel, maar al die energie zit in 50 fsec. geconcentreerd, zodat

het piekvermogen ca. 40 MegaWatt is! In een focus van 50 μ m diameter geeft dit een optische veldsterkte van meer dan 10^7 V/cm.

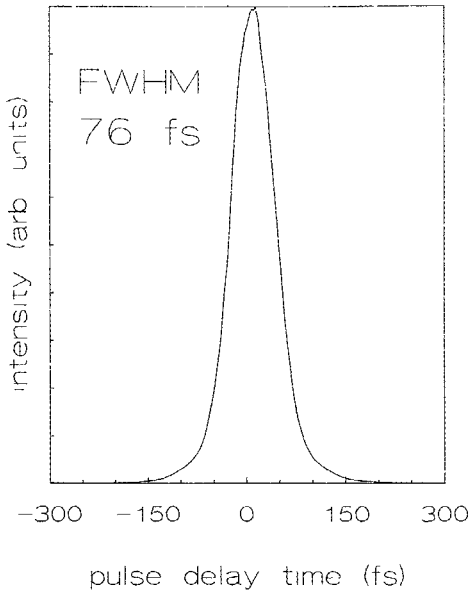
Zoveel energie is niet nodig om het beoogde niet-lineaire effect te bewerkstelligen.

Een klein deel van de versterkte puls wordt gefocusseerd op een monomode ($\varnothing = 4 \mu$ m) optische fiber met een lengte van ca. 1 cm. De combinatie van hoge veldintensiteit en korte pulsduur zorgt er nu voor dat efficiënte zelf-fase modulatie optreedt. Dit verschijnsel berust op het feit dat de brekingsindex van ieder materiaal bij voldoende lichtintensiteit een niet-lineaire component krijgt (het optische Kerr effect):

$$n = n_0 + n_2 l \quad (2)$$

Hierbij is l de intensiteit van het optische veld. De niet-lineaire brekingsindex geeft aanleiding tot een intensiteitsafhankelijke faseverschuiving. De fase die een frequentie ζ_0 opdoet voor een materiaal met lengte l is

$$\Phi = \frac{\omega_0 l}{c} n = \frac{\omega_0 l}{c} (n_0 + n_2 l) \quad (3)$$



Figuur 3

Autocorrelatie van versterkte femtoseconde pulsen. De volledige breedte (FWHM) van 76 femtosekunden houdt in dat de duur van de pulsen zelf ongeveer 50 femtosekunden moet zijn.

Voor een gepuist veld heeft dit een interessante consequentie. De tijdsafhankelijke intensiteit geeft een tijdsafhankelijke fase-

verschuiving: aan de voorkant van een puls neemt de faseverschuiving bij iedere optische cyclus toe, en aan de achterkant neemt de faseverschuiving weer af. Het gevolg is dat het spectrum van de puls wordt verbreed (figuur 4).

De instantie frequentie (in het tijdsdomein) wordt gegeven door:

$$\omega(t) = \omega_0 - \frac{\partial \Phi}{\partial t} = \omega_0 - \frac{\omega_0 l}{c} n_2 \frac{dl}{dt} \quad (4)$$

zodat we aan de voorkant een roodverschuiving waarnemen en aan de achterkant een blauwverschuiving. De zelf-fase modulatie geeft dus spektrale verbreding, terwijl de pulsdur nauwelijks verandert. Het gebruik van een monomode fiber zorgt ervoor dat dit op een stabiele, reproduceerbare manier gebeurt zonder complicaties als bijv. zelffocussering van het licht (ook een gevolg van de niet-lineaire brekingsindex).

De puls blijkt de fiber ook sterk verbreed in de tijd te verlaten. Dit is voornamelijk een gevolg van de normale, lineaire dispersie, d.w.z. de frequentie-afhankelijkheid van n_0 . Voor veel transparante diëlektrische materialen geldt in het zichtbare gebied van het elektromagnetische spectrum een Cauchy-type dispersie relatie:

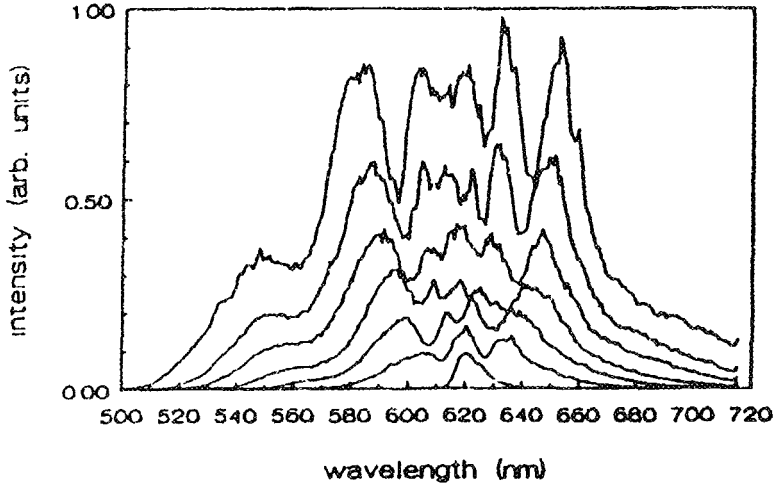
$$n_0(\omega) = A + B\omega^2 \quad (6)$$

Een materiaal met een dergelijke dispersierelatie geeft dus over een lengte l een fasefactor:

$$\Phi(\omega) = \frac{\omega l}{c} n_0(\omega) \quad (7)$$

wat tot gevolg heeft dat de laag-frequente

Continuum in F-SV-10 fiber



Figuur 4

Spectrum van pulsen bij het verlaten van de optische fiber. Met toenemende pulsenergie (van beneden naar boven) neemt de breedte van het spectrum ook toe t g v zelf-fase modulatie. De y-as is niet op schaal.

voorkant van de puls minder vertraagd wordt dan de hoog-frequente achterkant: de puls wordt langer.

Het gecombineerde effect van zelf-fase modulatie en dispersie kan worden berekend voor een bepaalde invoer puls door de niet-lineaire Schrödinger golfvergelijking numeriek uit te werken [5]. Om inzicht te krijgen in de fysika van pulscompressie te verkrijgen is het echter instructiever om uit te gaan van formule (6) en deze in een Taylorreeks te expanderen rond een of andere centrale frequentie ω_0 :

$$\Phi(\omega) = \Phi(\omega_0) + (\omega - \omega_0) \left\{ \frac{A}{c} + B \frac{3\omega_0^2}{c} \right\} + (\omega - \omega_0)^2 \left\{ B \frac{3\omega_0}{c} \left(1 + \frac{\omega - \omega_0}{3\omega_0} \right) \right\} \quad (8)$$

De eerste twee termen van deze reeks geven triviale fasefactoren die geen effect op de pulsform hebben. De laatste term, echter, waarin kwadratische en kubische componenten van de expansie zijn samengenomen, zorgt voor verbreding van de puls in de tijd.

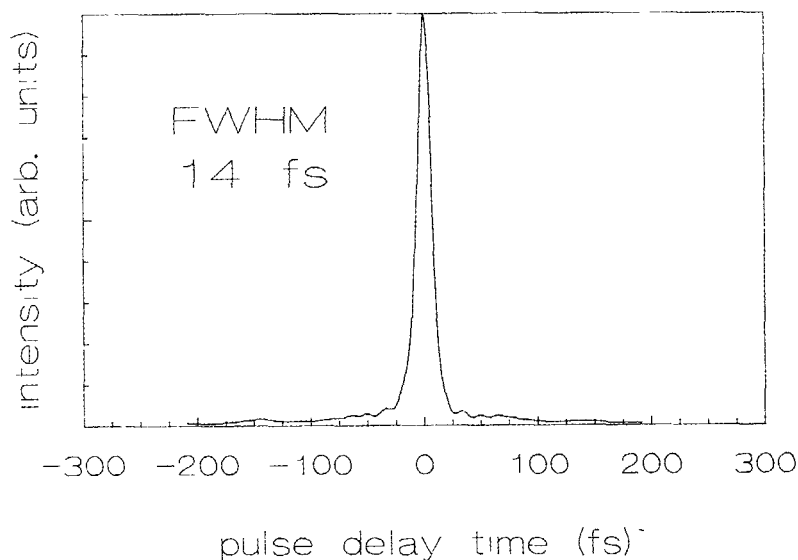
Wanneer de kubische term verwaarloosd kan worden, hangt de puls vervormende fasefactor dus kwadratisch van de frequentie af, wat wil zeggen dat de corresponderende instantane, temporele fase evenredig is met t^2 en de instantane frequentie evenredig met t . De dispersie induceert dus bij één of andere minimale fiberlengte een zogenaamde lineaire tijd, i.e. een lineair verloop van frequentie in de tijd [6]. Het aardige is nu dat er puls compressoren bestaan (i.e. een opstelling van dispersieve elementen), die ook een kwadratische afhankelijkheid van de fase hebben, maar met tegengesteld teken:

$$\Phi_{compressor} = \Phi_0 - a\omega^2 \quad (9)$$

Wanneer de compressor constante a instelbaar is, kunnen de fases van alle frequentiecomponenten gelijk gemaakt worden op een tijd en plaats in de ruimte. Er komt dan een puls tot stand die aanzienlijk korter kan zijn dan de puls die aanvankelijk de monomode fiber in ging. Twee voorbeelden van dergelijke compressoren, die als frequentie-afhankelijk delay lijnen gezien kunnen worden, staan in figuur 5. Bij de twee grating paren is de dispersie te variëren door de afstand tussen de gratings te veranderen, bij de vier prisma's wordt experimenteel de afstand meestal gelijk

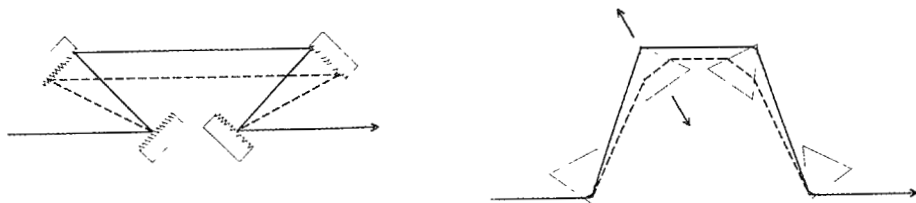
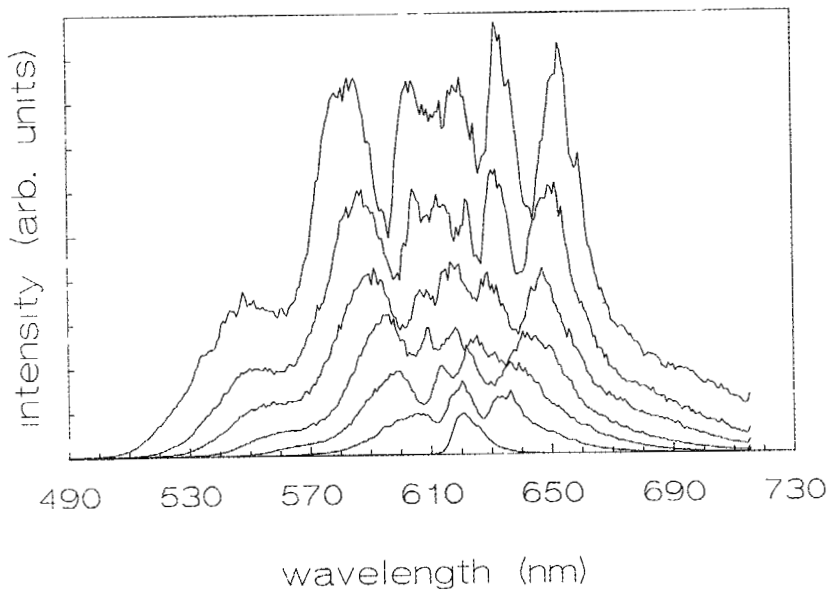
gehouden, maar wordt de hoeveelheid materiaal dispersie ingesteld (formule 6) doordat het licht meer of minder prisma materiaal doorloopt

Bovenstaande behandeling is, zoals aangegeven, niet exakt. Bij zeer korte pulsen geven prisma's of gratings niet voldoende compensatie voor het frequentieverloop binnen een puls. De reden is dat zowel materialen als de prisma en grating configuraties hogere orde termen in de frequentie Taylorreeks expansie hebben. Dit betekent dat niet iedere hoeveelheid materiaal dispersie gecompenseerd kan worden, zodat bijv. de fiberlengte veel kritischer wordt dan bij pure kwadratische faseverstoringen.



Figuur 6

Autocorrelatie van ultrakorte optische pulsen. De tijdsduur van deze pulsen is slechts 9 á 10 femtosekonden, d w z minder dan 10^{-14} seconden. Aangezien de elektromagnetische voortplantingssnelheid 3×10^{10} meter per seconde bedraagt, is de verplaatsing in deze tijd zelfs voor licht slechts 3 micrometer. Atomen en molekulen staan praktisch stil, alleen elektronen vertonen nog dynamika.

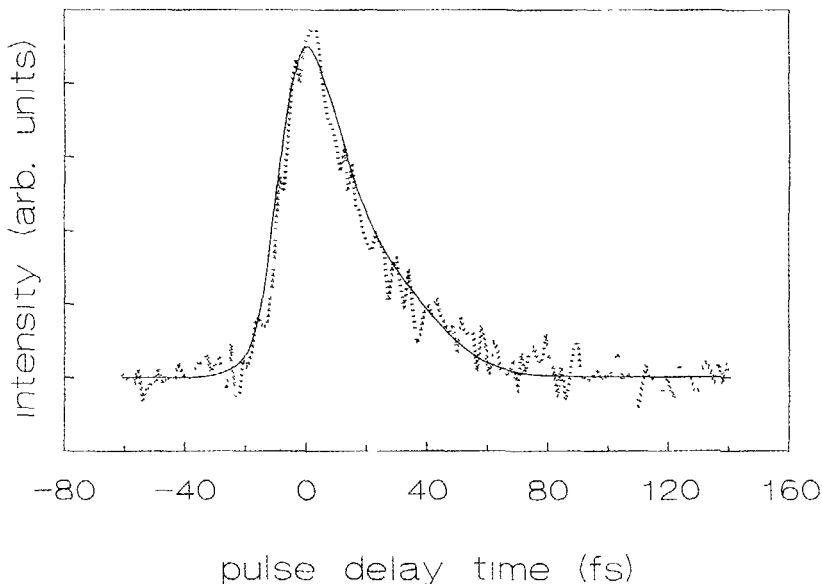


Figuur 5

Optische compressoren (a) grating compressor (b) prisma compressor. Pulsduur verkorting treedt op doordat de fasen van de verschillende frequentiecomponenten van de optische pulsen beïnvloed kunnen worden. De frequentie afhankelijke fase factoren zijn:

$$\Phi_{materialen}(\omega) = \frac{\omega l_m}{c} n_m(\omega), \quad \Phi_{prisma's}(\omega) = \frac{2\omega l_p}{c} \cos\{\beta(\omega)\}, \quad \Phi_{gratings}(\omega) = \frac{2\omega l_g}{c} \left[1 - \left(\frac{2\pi c}{\omega d} - \sin \alpha \right)^2 \right]^{1/2}$$

Hierbij is n_m is de brekingsindex, l_m de geometrische weglengte door het materiaal, l_p de afstand tussen de prisma's, β de hoek tussen de lijn die de top hoeken van de prisma's verbindt en de diffractiehoek voor frequentie ω , l_g de afstand tussen de gratings, α de hoek van inval op de gratings, d de afstand tussen groeven op de gratings



Figuur 7

Tijds opgelost lichtverstrooiings signaal (grating-scattering) aan een vloeistof bestaande uit kleurstof molekulen Resorufine, in lage concentratie opgelost in het oplosmiddel DMSO. De geheugentijd van de elektronische toestanden van dit molecuul blijkt uiterst kort te zijn. De getrokken lijn is gebaseerd op een statistisch model voor de vorming van een zgn. foton echo.

Nu blijkt het zo te zijn, dat de derde orde termen in de expansie van prisma- en grating-dispersie een tegengesteld teken hebben. Wanneer nu zowel prisma's als gratings worden gebruikt, kunnen ook kubische termen worden gekompenseerd! Op deze wijze is de puls verkregen waarvan de autocorrelatie in figuur 6 staat afgebeeld. De autocorrelatiebreedte is 14 fsec., zodat de FWHM van de puls 9 à 10 fsec. zal bedragen. *Slechts 5 optische oscillaties zijn aanwezig binnen deze breedte!* In feite wordt de waargenomen breedte mogelijk nog beperkt door experimentele factoren. Voor optimale kompressie zou de prisma-afstand I eigenlijk vergroot moeten worden. De huidige afmetingen van de prisma's verhinderen dat. Het autocorrelatie-experiment zelf kan ook de tijdsresolutie bepa-

len. De femtoseconde pulsen kruisen elkaar onder een hoek van ca 4° in een 180 µm dik KDP kristal. Dispersie, phase matching of aberraties in de focusseeroptiek kunnen ook het resultaat van fig. 6 bepalen!

Optische dynamika van vloeistoffen

Als voorbeeld van een situatie waarin een ultrahoge tijdsresolutie absoluut nodig is, staat in figuur 7 het resultaat van een tweepuls verstrooiings experiment afgebeeld. In dit experiment hebben twee femtoseconde pulsen interactie met elkaar via de niet-lineaire polarisatie die in elektronische toestanden van een dye molecuul worden opgewekt. In vloeistoffen blijkt het verval,

van wat wel een foton echo genoemd kan worden, bijzonder snel te zijn. Een microscopische beschrijving van de fluctuaties die verantwoordelijk zijn voor deze ultrasnelle optische dynamika is niet voorhanden [8]. Zelfs een fenomenologische aanpak is niet triviaal. Zo valt bijv. te verwachten dat de aanname van exponentiële relaxatie processen in deze omstandigheden onjuist is. Deze aanname berust op de zgn Markov benadering, die er op neer komt dat de omgeving (het "bad"), geen enkele herinnering bewaart aan eerdere gebeurtenissen op de tijdschaal van het experiment. Wanneer de tijdschaal waarop een systeem dynamika vertoont zo kort wordt als die van fig. 7, dan moet expliciet rekening worden gehouden met de correlatietijd van het bad. Of anders gezegd: de scheiding tussen systeem en bad is niet zo eenvoudig te maken als in de Markov limiet. Voor een beschrijving van de dynamika is het dan nodig om expliciete aannames te maken over de statistische eigenschappen die een rol spelen. De desbetreffende theoriën kunnen pas nu met enige betrouwbaarheid in het tijddomein getest worden [9].

Referenties

1. S. Seidel et. al., Phys. Rev. Lett **61**, 2522 (1988)
2. Particle Data Group, Rev. Mod. Phys. **56** II, S144 (1984).
3. Een alternatieve methode is om gebruik te maken van de correlatietijd van een stochastische lichtbron.
4. D.A. Wiersma en K. Duppen, Ned. T. v. Nat. **53**, 29 (1987).
5. W.J. Tomlinson, R.H. Stolen and C.V. Shank, J. Opt. Soc. Am. B **1**, 139 (1984).
6. D. Grischkowsky and A.C. Balant, Appl. Phys. Lett **41**, 1 (1982).
7. R.L. Fork, C.H. Brito Cruz, P.C. Becker and C.V. Shank, Opt. Lett. **12**, 483 (1987).
8. E.T.J. Nibbering, K. Duppen and D.A. Wiersma, J. Chem Phys. **93**, 5477 (1990).
9. E.T.J. Nibbering, D.A. Wiersma and K. Duppen, Phys. Rev. Lett. **66**, 2464 (1991).